

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-148169

(43)Date of publication of application : 07.06.1996

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 06-309936

(71)Applicant : TOKYO GAS CO LTD

(22)Date of filing : 17.11.1994

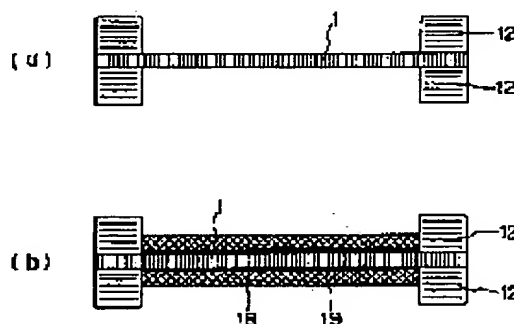
(72)Inventor : SEKI TSUTOMU

## (54) SEALING METHOD FOR SOLID POLYMERIC FUEL CELL

## (57)Abstract:

PURPOSE: To provide a sealing method for ensuring a sufficient sealing effect only through the light pressing of the polymeric electrolyte film of a solid polymeric fuel cell, and preventing damages to the film itself by preliminarily bonding the film to the packing (gasket) of the fuel cell for integration with an adhesive.

CONSTITUTION: The solid polymeric electrolyte film 1 and the packing 12 of a solid polymeric fuel cell are preliminarily bonded to and integrated with each other by use of an adhesive, thereby providing a sealing effect. In this case, fine irregularities are preferably formed on the sealing side of the packing 12 by a sand blasting or a plasma etching process and, then, the adhesive is applied to the sealing side so roughened. Preferably, the film 1 is made of perfluorocarbon sulfonic acid resin, and the adhesive to be used is a resin solution of a perfluorocarbon sulfonic acid system (or similar system).



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 8 - 1 4 8 1 6 9

(43) 公開日 平成 8 年 (1996) 6 月 7 日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>

H01M 8/02

8/10

識別記号

弁内整理番号

S 9444-4K

9444-4K

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 3 F D (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平 6 - 3 0 9 9 3 6

(22) 出願日 平成 6 年 (1994) 1 1 月 1 7 日

(71) 出願人 0 0 0 2 2 0 2 6 2

東京瓦斯株式会社

東京都港区海岸 1 丁目 5 番 2 0 号

(72) 発明者 関 務

神奈川県横浜市磯子区汐見台 3 - 3 - 3 3

0 3 - 3 2 5

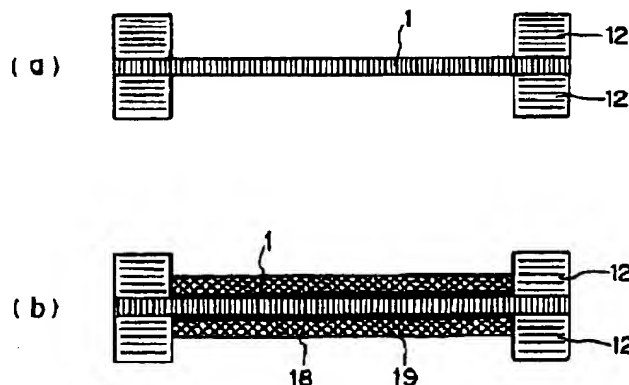
(74) 代理人 弁理士 加茂 裕邦

(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池のシール方法

(57) 【要約】

【構成】固体高分子型燃料電池の固体高分子電解質膜とパッキンを予め接着して一体化することによりシールを行うことを特徴とする固体高分子型燃料電池のシール方法。

【効果】本発明に係るシール方法によれば、電解質膜とパッキン間のガスシールを容易且つ確実にすることができ、燃料電池の安全性を向上させることができる。また従来よりも膜を軽く押さえるだけで十分にシールすることができ、このため電解質膜の損傷を大幅に低減させることができる。



( 2 )

特開平 8-148169

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体高分子型燃料電池の固体高分子電解質膜とパッキンとを予め接着剤により接着して一体化することによりシールを行うことを特徴とする固体高分子型燃料電池のシール方法。

【請求項 2】 パッキンのシール面にサンドブラスト又はプラズマエッチングにより細かい凸凹を付けた後、接着剤をその凹凸面に塗布することを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池のシール方法。

【請求項 3】 固体高分子電解質膜がパーフルオロカーボンスルホン酸樹脂系の膜で、接着剤がパーフルオロカーボンスルホン酸系の樹脂溶液である請求項 1 又は 2 記載の固体高分子型燃料電池のシール方法。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、固体高分子型燃料電池のシール方法に関し、より具体的には固体高分子型燃料電池の固体高分子電解質膜とシールとのガスシールを容易且つ確実にし、固体高分子型燃料電池の安全性を有効に向上させることができる固体高分子型燃料電池のシール方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 固体高分子型燃料電池はイオン伝導体すなわち電解質が固体で且つ高分子である点に特徴を有するものであるが、その固体高分子電解質としては具体的にはイオン交換樹脂等の膜が使用され、この高分子電解質膜を挟んで負極（アノード）及び正極（カソード）の両電極を配置し、例えば負極側に燃料としての水素ガスを、また正極側には酸素又は空気を供給して電気化学反応を起こさせることにより電気を発生させるものである。

【0003】 この装置には各種態様のものがあるが、図 1 は、この固体高分子型燃料電池の原理ないしは一態様を説明するための概略図である。図 1 中、1 は高分子電解質膜、2 はカソード電極（正極）、3 はアノード電極（負極）であり、高分子電解質膜 1 は相対するこの正負両電極 2、3 間に配置されている。また 4 はカソード電極側集電体、5 はアノード電極側集電体であり、それぞれ正負の電極 2 及び 3 に当接されている。このうちカソード電極側集電体 4 の電極 2 側には酸素又は空気供給用の溝が設けられ、同じくアノード電極側集電体 5 の電極 3 側には水素供給用の溝が設けられ、正極側集電体 4 の溝は酸素又は空気供給管 6 に、また負極側集電体 5 の溝は水素供給管 7 に連通している。

【0004】 また、8 は正極側集電体 4 に当接して設けられたカソード端子板、9 は負極側集電体 5 に当接して設けられたアノード端子板であり、電池の作動中にこれらを通して電力が取り出される。10 は上部枠体すなわち上部フレーム、11 は下部枠体すなわち下部フレームであり、これら上下両枠体 10、11 により高分子電解

2

質膜 1 からカソード端子板 8 及びアノード端子板 9 までの電池本体（この用語は、後述のとおり電極を電解質膜に当接したものを指すものとしても使用している）を被って固定されている。

【0005】 これら上下両枠体 10、11 間には、高分子電解質膜 1 からカソード端子板 8 及びアノード端子板 9 までの電池本体の周縁部を囲ってパッキン（ガスケット）12 が設けられ、これによってその電池本体の周縁部を密に固定してシールし、特に高分子電解質膜 1 及び正負両電極 2、3 に対してガスシールされている。なお図 1 中、13 及び 14 は冷却水供給管であり、これらはそれぞれ上部枠体 10 及び下部枠体 11 の内面に設けられた溝（閉通路）に連通し、カソード端子板 8 の背面及びアノード端子板 9 の背面から冷却するようになっている。

【0006】 以上は、電池本体が単一の場合であるが、この電池本体を二つ以上積み重ねて構成することも行われる。この場合には二つ以上の各電池本体間にセパレーター（スペーサー）を介在させ、これにも冷却水用の溝等を設ける必要はあるが、電池本体の周縁部を囲ってパッキンを設け、その電池本体の周縁部を密に固定してシールし、高分子電解質膜 1 及び正負両電極 2、3 に対してガスシールをすること等を含めて、基本的には上述単一の電池本体の場合と同じである。この場合には、パッキン等の締め付けは、上下両枠体 10、11 に加え、上記セパレーターをも介して行われる。

【0007】 前述単一の電池本体、またこの電池本体を二つ以上積み重ねて構成する場合にも、その縁部を密に（特にガス密に）シールする必要がある。そのシールの仕方としては、これまで①上述のとおり高分子電解質膜の周囲にパッキンを介在させて密着させる、②Oリングを介在させ、これにより密着させる等の手法が用いられ、提案されている。

【0008】 図 2 は、このうち②Oリングによるシールの仕方の一例を示すものである（図には片側のみ示しているが、その余の側についても同様である）。図示のとおり電解質膜 1 の両面上に電極 2（3）が配置され、図 1 の態様ではその上下から上下両枠体 10（11）により、また電池本体を二つ以上積み重ねて構成する場合には上下両枠体及びセパレータ 16、17 により、これらと電解質膜 1 の周縁部との間にOリング 15 を介在させて密着させることでシールされる。なお図 2 中符号「16（10）」、「17（11）」と示しているのは、セパレータ 16、17 が最上部又は最下部となる場合に、上部枠体 10 又は下部枠体 11 に相当することになることを意味している。

【0009】 しかし、これらの手法でその密着を確実にするためには、何れもそれらパッキン又はOリングを強く押圧する必要があるが、このためこれらが当接する高分子電解質膜自体を損傷するばかりでなく、前述電池本

50

( 3 )

特開平8-148169

3

体に対しても必要以上の締め付けが行われてしまうことにもなる。また電解質膜は、通常、温度や加湿の有無により伸縮する性質があり、これによりシール部に負担がかかりやすいため、上述①、②等の何れのシール手法をとるにしても、この点にも十分配慮する必要がある。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】そこで本発明は、その電池本体の周縁部を固定してシールし、高分子電解質膜1及び正負両電極2、3に対してガスシールをするに当たり、そのように①高分子電解質膜の周囲にパッキンを介在させ密着させる、②Oリングを介在させ密着させる等の手法における上記欠点ないし問題点を一挙に解決し、高分子電解質膜を軽く押さえるだけで十分にシールすることができ、またこれによって高分子電解質膜自体を損傷することのない等の優れた利点を有するシール法を提供することを目的とするものである。

【0011】

【課題を解決するための手段】本発明は、従来の技術における上記欠点ないしは問題点を解決するためになされたものであり、固体高分子型燃料電池の高分子電解質膜とパッキン（ガスケット）とを予め接着剤により接着して一体化することにより、シールを行うことを特徴とする固体高分子型燃料電池のシール方法を提供するものである。

【0012】この場合、上記接着・一体化をより効果的にする上では、その接着に先立ちそのパッキンに、これが高分子電解質膜と当接する面（電池と接する面）に対してサンドブラスト（スチールブラスト等を含む）やプラズマエッチング等により細かい凹凸を付けておくのが特に有効である。これによって高分子電解質膜に対してパッキンを密にシールし且つ強固に固定することができる。

【0013】燃料電池用の高分子電解質膜としては、これまで当初の①フェノールスルホン酸とホルムアルデヒドとの縮合合成膜から逐次改善、改良され、以降これまでに②部分的にスルホン化したポリスチレン膜、③スチレン-ジビニルベンゼンをフルオロカーボンのマトリックスにクロスリンクさせた後スルホン化した膜、④、⑤の膜でαC-H結合を含まない膜、⑥トリフルオロスチレンスルホン酸の重合膜、⑦フルオロカーボンマトリックスにトリフルオロエチレンをグラフト化した膜、⑧パーフルオロカーボンスルホン酸樹脂膜等が提案されている。

【0014】本発明に係るシール方法は、上記例示の高分子電解質膜とは限らず、高分子電解質膜の種類如何を問わず何れも適用可能であり、またパッキン材料についてもフッ素ゴムその他それ自体化学的に安定で、これと接触する材料を変質させることなく、また水素や空気等の流体が浸透しない等、パッキンとして所定の諸性質を備えているものであれば、何れも使用することができ

る。

【0015】また、本発明において、上記予め高分子電解質膜とパッキン（ガスケット）とを接着して一体化する、その接着一体化のさせ方としては、両者を予め接着一体化させ得る手法であれば特に制限はないが、例えば高分子電解質膜とパッキンとの当接面的一方又は両方に適当な接着剤を塗布し、必要に応じて溶媒を除去した後、高分子電解質膜に対してパッキンを当接、接合することにより行うことができる。この場合、その接着剤としては、両者を密に接着し得るものであれば使用できるが、両者、特に高分子電解質膜を化学作用等により劣化させないものである必要があり、このため特に高分子電解質膜と同系統の成分からなる接着剤であるのが望ましい。

【0016】この点、前記例示の高分子電解質膜のうち、①パーフルオロカーボンスルホン酸系の樹脂膜（NAFION、商品名）は、その優れた電気的特性に加え（イオン伝導率 $5 \times 10^{-1} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ （湿潤状態、25℃））、化学的にも物理的にもきわめて安定であり、機械的にも大きいこと等から、現在主としてこの樹脂膜が使用されている。この膜は、厚さ50～200μm程度の膜として使用され、この膜厚でも単位面積当りの電気抵抗は0.1～0.5Ω程度で電池の内部抵抗の主な原因とはなり得ないほど小さいが、高分子電解質膜としてこの膜を使用する場合には、その接着剤としては、好ましくはこれと同じ高分子電解質膜の溶液（例えばNAFION-117（登録商標）の膜を使用するなら、NAFION溶液（Aldrich Chemical社製、登録商標））を使用する。

【0017】次に、本発明に係るシール方法の（接着剤塗布後、溶媒除去を伴う場合の）一態様についてその概略を述べると、まず①厚さ1～5mm程度のパッキンのシール面（電池と接する面＝高分子電解質膜と接する面）にサンドブラスト或いはプラズマエッチング等により細かい凸凹を付ける。②、③で処理した凹凸面に高分子電解質膜の溶液を電解質膜が0.1～5mg/cm<sup>2</sup>程度となるように塗付する。この塗付の仕方としては、ロール法、刷毛を用いる手法その他この種塗布手段として通常使用される方法を用いることができる。

【0018】④、次いで②の塗布溶液中の溶媒をまず室内で乾かし、表面から溶媒から見えなくなった時点で、例えば真空乾燥器を用いて温度80℃程度、約3時間程度乾かし、溶媒を完全に取り除く。⑤、⑥～⑧の処理を施したパッキンを2枚用意しシール面を内側にしてその間に高分子電解質膜を挟み、温度120℃以上、特に140～200℃程度、圧力50～200kg/cm<sup>2</sup>程度で、ホットプレスを用いてパッキンを一体化した膜を得る。⑨、引続き④で得られた膜にガス拡散電極を接合して燃料電池本体を得る。

【0019】次いでこの燃料電池本体をパッキンがシー

50

(4)

特開平8-148169

5

ル部分に収まる枠体(及びセバレータ)で挟み、アノード電極、カソード電極の両電極その他必要な構成要素を例えば図1のように組み立てることにより、燃料電池を得ることができる。また、パッキンの厚みや形状は燃料電池構造の態様、規模等如何により図1のような形態とは異なる場合があるが、本発明のシール方法は、それら態様、規模等如何により制限されることはなく、また電池本体が単一の場合とは限らず、この電池本体を二つ以上積み重ねて構成する場合についても同様に適用できるものである。

【0020】

【実施例】以下、本発明の実施例を説明するが、本発明がこの実施例に限定されるものではないことは勿論である。①まず、厚さ3mmのバイトン製パッキン(フッ素ゴム、Du Pont社製、商品名)のシール面(電池と接する面)にサンドブラストにより細かい凸凹を付けた。②次いで、①で処理した面上にロール法によりNafion膜の溶液(高分子電解質膜の溶液、Aldrich Chemical社製、登録商標)を電解質膜が3mg/cm<sup>2</sup>となるように塗付した。

【0021】③その後、上記②の塗布面の溶液中の溶媒をまず室内で乾かし、表面から溶媒から見えなくなった時点で、真空乾燥器を用いて温度80℃、3時間乾かし溶媒を完全に取除いた。④、①～③の処理を施したパッキンを2枚用意し、シール面を内側にして、その間にNafion-117膜(高分子電解質膜、Du Pont社製、商品名)を挟み、温度140℃、圧力70kg/cm<sup>2</sup>で10秒間ホットプレスをし、パッキンを接着、一体化した固体高分子電解質膜を得た。

【0022】⑤、次いで④で得られたパッキン一体化固体高分子電解質膜にガス拡散電極を接合して燃料電池本体を得た。本実施例で用いたこのガス拡散電極は、気孔率80%、厚さ0.4mmのカーボンペーパーをテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体のディスパージョンで撥水化したカーボンペーパー上に、パーフルオロカーボンスルホン酸樹脂のアルコール溶液でコーティングしてなるカーボンに白金50重量%を担持させた触媒粒子にポリテトラフルオロエチレンのディスパージョンを加えた懸濁液を堆積させて得たものである。

【0023】図3(a)は、以上で得たパッキンを一体化した高分子電解質膜を、また図3(b)はそのパッキン一体化高分子電解質膜にガス拡散電極を接合した燃料電池本体の構造を示したものである。図3中、高分子電解質膜1及び正負両電極2、3の配置は図1～図2の場合と同じであるが、上記で得た電極2、3は、撥水化カーボンペーパーがガス拡散層18を、また触媒粒子の堆積層が触媒層19を形成している。このため両電極2、

6

3は、ともに触媒層19側が高分子電解質膜面に当接するように接合している。

【0024】次いで、常法により、上記燃料電池本体に集電体、端子板等を密着させ、水素及び酸素の出入口等を設置して図1のように固体高分子型燃料電池としてセットし、その電極特性及び電池としての性能の変化を測定した。比較例として別途作製した、本発明のように高分子電解質膜とパッキンとを予め接着・一体化することなく、パッキンを従来法により密にシールをした以外

10 は、本実施例と同様にして得た燃料電池についても同じく測定した。両者はほぼ同等の性能を示したが、従来法では、膜の破損等が発電中に30%の割合で生じたのに対して、実施例では破損等のトラブルは生じなかった。この点、同じ試験を10回実施しても全く同様であった。またシール後の電解質膜面を目視により観察したところ、本実施例によものには、その解体後でも膜の損傷は認められなかった。

【0025】

【発明の効果】本発明に係るシール方法によれば、電解質膜とパッキンの間のガスシールを容易且つ確実にすることができ、燃料電池の安全性を向上させることができる。また従来よりも膜を軽く押さえるだけで十分にシールすることができ、このため電解質膜の損傷を大幅に低減させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】固体高分子型燃料電池の一態様を説明するための概略図。

【図2】Oリングによる従来のシール態様の一例を示す図。

30 【図3】実施例で得たパッキンを一体化した高分子電解質膜及びこれにガス拡散電極を接合した燃料電池本体の構造を示す図。

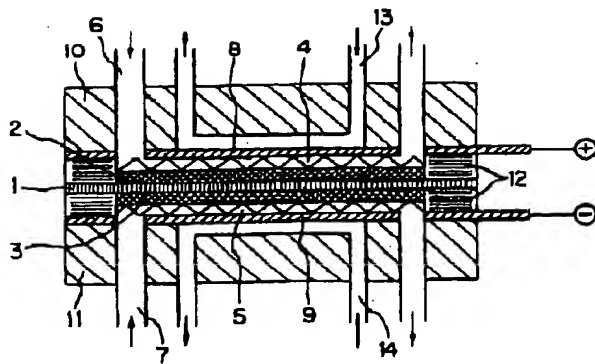
【符号の説明】

- 1 高分子電解質膜
- 2 カソード電極(正極)
- 3 アノード電極(負極)
- 4、5 集電体
- 6 空気供給管
- 7 水素供給管
- 40 8、9 端子板
- 10 上部枠体(上部フレーム)
- 11 下部枠体(下部フレーム)
- 12 パッキン
- 13、14 冷却水供給管
- 15 Oリング
- 16、17 セバレータ
- 18 ガス拡散層
- 19 触媒層

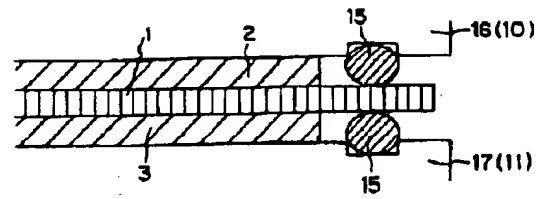
( 5 )

特開平 8 - 1 4 8 1 6 9

【 図 1 】



【 図 2 】



【 図 3 】

